

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Shin YAMAGUCHI, et al.

GAU:

SERIAL NO: New Application

EXAMINER:

FILED: Herewith

FOR: DENTAL BLEACHING AGENT SET AND THE METHOD FOR BLEACHING TEETH

REQUEST FOR PRIORITY

COMMISSIONER FOR PATENTS
ALEXANDRIA, VIRGINIA 22313

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number _____, filed _____, is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date(s) of U.S. Provisional Application(s) is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e):
Application No. _____ Date Filed _____

- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NUMBER</u>	<u>MONTH/DAY/YEAR</u>
Japan	2003-062839	March 10, 2003

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. _____ filed _____
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number _____
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. _____ filed _____; and
- ☐ (B) Application Serial No.(s) _____
☐ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Norman F. Oblon

Registration No. 24,618

Customer Number

22850

Tel. (703) 413-3000
Fax. (703) 413-2220
(OSMMN 05/03)

C. Irvin McClelland
Registration Number 21,124

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日
Date of Application:

2003年 3月10日

出 願 番 号
Application Number:

特願2003-062839

[ST.10/C]:

[JP2003-062839]

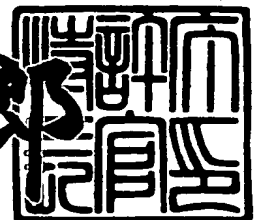
出 願 人
Applicant(s):

株式会社ジーシー
株式会社豊田中央研究所

2003年 7月 2日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田 信一郎



出証番号 出証特2003-3052414

【書類名】 特許願

【整理番号】 GCD1661

【提出日】 平成15年 3月10日

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【国際特許分類】 A61K 7/20

【発明者】

【住所又は居所】 東京都板橋区蓮沼町 7 6 番 1 号 株式会社ジーシー内

【氏名】 山口 晋

【発明者】

【住所又は居所】 東京都板橋区蓮沼町 7 6 番 1 号 株式会社ジーシー内

【氏名】 関口 敏弘

【発明者】

【住所又は居所】 東京都板橋区蓮沼町 7 6 番 1 号 株式会社ジーシー内

【氏名】 幾島 啓介

【発明者】

【住所又は居所】 東京都板橋区蓮沼町 7 6 番 1 号 株式会社ジーシー内

【氏名】 赤羽 正治

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道 4 1 番地の 1 株
式会社豊田中央研究所内

【氏名】 青木 恒勇

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道 4 1 番地の 1 株
式会社豊田中央研究所内

【氏名】 森川 健志

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道 4 1 番地の 1 株
式会社豊田中央研究所内

【氏名】 大脇 健史

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道4 1 番地の1 株
式会社豊田中央研究所内

【氏名】 多賀 康訓

【特許出願人】

【識別番号】 000181217

【氏名又は名称】 株式会社ジーシー

【特許出願人】

【識別番号】 000003609

【氏名又は名称】 株式会社豊田中央研究所

【代理人】

【識別番号】 100070105

【弁理士】

【氏名又は名称】 野間 忠之

【電話番号】 03-3214-2861

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 000273

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9707600

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 歯牙用漂白剤セット及び歯牙漂白方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 光触媒作用のある酸化チタン粉末を含む有機溶媒から成る第一成分と、水中で過酸化水素を発生する化合物と増粘剤と担体とから成る第二成分とから構成されていることを特徴とする歯牙用漂白剤セット。

【請求項 2】 光触媒作用のある酸化チタン粉末が 0.001～30 重量%含まれている請求項 1 に記載の歯牙用漂白剤セット。

【請求項 3】 光触媒作用のある酸化チタン粉末が酸化チタン結晶格子中に窒素を含有させた $Ti-O-N$ 構成を有する酸窒化チタンの粉末であり、可視光領域において光触媒作用を発現するものである請求項 1 又は 2 に記載の歯牙用漂白剤セット。

【請求項 4】 酸窒化チタンの粉末が、その表面にセラミックを島状、針状又は網目状に担持したものである請求項 3 に記載の歯牙用漂白剤セット。

【請求項 5】 酸窒化チタンの粉末が、その表面に電荷分離物質が担持されたものである請求項 3 又は 4 に記載の歯牙用漂白剤セット。

【請求項 6】 第一成分に更に金属酸化物、金属塩、金属粉末の少なくとも一種が含まれている請求項 1 ないし 5 の何れか 1 項に記載の歯牙用漂白剤セット。

【請求項 7】 金属酸化物、金属塩、金属粉末の少なくとも一種が 0.001～10 重量%含まれている請求項 6 に記載の歯牙用漂白剤セット。

【請求項 8】 第一成分に更に増粘剤が 0.5～20 重量%含まれている請求項 1 ないし 7 の何れか 1 項に記載の歯牙用漂白剤セット。

【請求項 9】 第一成分に更に水が含まれている請求項 1 ないし 8 の何れか 1 項に記載の歯牙用漂白剤セット。

【請求項 10】 第一成分及び／又は第二成分の pH 値が 5.0～10.0 である請求項 1 ないし 9 の何れか 1 項に記載の歯牙用漂白剤セット。

【請求項 11】 第二成分が、水中で過酸化水素を発生する化合物：1～40 重量%，増粘剤：0.5～20 重量%，担体：残部で構成されている請求項 1

ないし 1 0 の何れか 1 項に記載の歯牙用漂白剤セット。

【請求項 1 2】 光触媒作用のある酸化チタン粉末を含む有機溶媒から成る第一成分を歯牙表面に付着させ、次いで水中で過酸化水素を発生する化合物と増粘剤と担体とから成る第二成分を歯牙表面に接触させ光照射を行うことを特徴とする歯牙漂白方法。

【請求項 1 3】 光触媒作用のある酸化チタン粉末：0.001～30重量%と金属酸化物、金属塩、金属粉末の少なくとも一種：0.001～10重量%とを含む有機溶媒から成る第一成分を歯牙表面に付着させ、次いで水中で過酸化水素を発生する化合物：1～40重量%と増粘剤：0.5～20重量%と担体とから成る第二成分を歯牙表面に接触させ光照射を行うことを特徴とする歯牙漂白方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、歯牙に沈着した色素による歯牙の着色や変色を光触媒及び過酸化水素の作用により除去（漂白）するための歯牙用漂白剤セット及びこの歯牙用漂白剤セットを使用して歯牙を漂白するための歯牙漂白方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

一般的に歯の白さは美容上重要な要素であると考えられており、若い女性を中心として歯を白くしたいという希望が強く、歯牙の漂白を求めるケースが増加している。歯牙の漂白方法としては、過酸化水素水を用いた方法が一般的に行われてきた。

【0003】

即ち、歯牙の漂白方法としては過酸化水素水に光や熱を使用する漂白方法が一般的であり、これは過酸化水素水を浸したガーゼを歯牙の唇面に乗せ、ランプで光を左右から約30分間照射する方法である。この方法では、ランプはできるだけ接近させ、ガーゼが乾燥しないように約5分毎に過酸化水素水の補給を行うことが必要である。

【0004】

また、ランプによる光の照射に代えて高周波電気メスに装着したスプーン型チップで高周波電流を1秒間通電し、8秒間休止する操作を6～8回繰り返す方法や、ガーゼに浸す代わりに過酸化水素水に増粘剤を混入した溶液（ペースト）を薬剤として使用することにより歯牙に直接適用する方法もある。

【0005】

その他にも、塩酸、過酸化水素水、ジエチルエーテルの混合液を薬剤として使用する漂白方法や、過ホウ酸ナトリウムの粉末と30重量%過酸化水素水とを練和したペーストを薬剤として使用方法や、過酸化水素水とオルトリン酸とを混合して成る歯の漂白剤及び漂白方法（例えば、特許文献1参照。）や、過酸化水素水に無水ケイ酸を混合した漂白剤及び当該漂白剤を塗布する生活歯の漂白方法（例えば、特許文献2参照。）や、歯科用漂白剤（過酸化尿素水素、過酸化水素カルバミド、カルバミドペルオキシドなど）とマトリックス材料（カルボキシメチレンなど）から成る歯科漂白組成物及びそれらを用いて歯を漂白する方法（例えば、特許文献3参照。）など数多くの過酸化水素水と各種器具と他の薬剤との組合せによる漂白剤及び漂白方法が提案されている。しかし、過酸化水素を使用したこれらの従来方法では漂白には時間がかかるという欠点があった。また米国で行われている漂白方法の一つとして、過酸化水素水を使用せずに10重量%程度の濃度の過酸化尿素を用いた漂白方法もあるが、過酸化水素と同様の理由により十分な効果は得られていない。

【0006】

前述のような過酸化水素水を用いる漂白方法の他に、光触媒作用を有する二酸化チタン粉末と低濃度の過酸化水素とを用いた歯牙の漂白方法も提案されている（例えば、特許文献4参照。）。しかしながら従来の二酸化チタンを用いた歯牙の漂白剤も漂白効率が悪く、患者が満足する漂白効果を得るためには多大な漂白時間を要していたのである。

【0007】

【特許文献1】

特開平8-143436号公報

【特許文献2】

特開平5-320033号公報

【特許文献3】

特開平8-113520号公報

【特許文献4】

特開平11-92351号公報

【0008】

【発明が解決しようとする課題】

そこで本発明は前記した従来技術の欠点を解消し、より高い漂白効果を示す歯牙用漂白剤セット及び歯牙漂白方法を提供することを課題とする。

【0009】

【課題を解決するための手段】

本発明者等は前記課題を解決すべく鋭意検討した結果、従来では漂白剤中に5重量%前後配合されている光触媒作用のある酸化チタン粉末が外部からの光により励起される際に、酸化チタン自らの持つ遮光性により漂白効果を発揮するべき歯牙の表面にある酸化チタンまで光が届きにくいことが漂白効率を低下させていることに着目し、より効率良く酸化チタンを励起させる新規な歯牙用漂白剤セット及びその歯牙用漂白剤セットを使用して歯牙を漂白する歯牙漂白方法を完成した。

【0010】

即ち本発明の一つは、光触媒作用のある酸化チタン粉末を含む有機溶媒から成る第一成分と、水中で過酸化水素を発生する化合物と増粘剤と担体とから成る第二成分とから構成されていることを特徴とする歯牙用漂白剤セットに関するものであり、この第一成分中の光触媒作用のある酸化チタン粉末は0.001~30重量%含まれていることが好ましく、更に第一成分に更に金属酸化物、金属塩、金属粉末の少なくとも一種が含まれているとより好ましく、その配合量は0.001~10重量%が好ましい。そして、第一成分には更に増粘剤が0.5~20重量%や水が含まれている場合もある。また、第二成分は、水中で過酸化水素を発生する化合物：1~40重量%、増粘剤：0.5~20重量%、担体：残部で

構成されていることが好ましい。

【0011】

第一成分中の光触媒作用のある酸化チタン粉末は、酸化チタン結晶格子中に窒素を含有させたTi-O-N構成を有し可視光領域において光触媒作用を発現するものが好ましく、その表面にセラミックを島状、針状又は網目状に担持したものであったり、その表面に電荷分離物質が担持されたものであると効果が高く好ましいのである。

【0012】

そして、第一成分及び／又は第二成分のpH値は5.0～10.0であると第二成分中の水中で過酸化水素を発生する化合物の活性の高い範囲で利用できるのが好ましいのである。

【0013】

また本発明のもう一つは、光触媒作用のある酸化チタン粉末を含む有機溶媒から成る第一成分を歯牙表面に付着させ、次いで水中で過酸化水素を発生する化合物と増粘剤と担体とから成る第二成分を歯牙表面に接触させ光照射を行うことを特徴とする歯牙漂白方法に関するものであり、具体的には光触媒作用のある酸化チタン粉末：0.001～30重量%と金属酸化物、金属塩、金属粉末の少なくとも一種：0.001～10重量%とを含む有機溶媒から成る第一成分を歯牙表面に付着させ、次いで水中で過酸化水素を発生する化合物：1～40重量%と増粘剤：0.5～20重量%と担体とから成る第二成分を歯牙表面に接触させ光照射を行うことを特徴とする歯牙漂白方法が好ましいのである。

【0014】

【発明の実施の形態】

本発明に係る歯牙用漂白剤セット及び歯牙漂白方法に用いられる光触媒作用のある酸化チタン粉末は、従来から歯牙の漂白で用いられているアナターゼ型、ルチル型及びブルッカイト型のいずれの光触媒作用を生じる二酸化チタン粉末もその形態、性状を問わず使用できるが、中でもアナターゼ型の二酸化チタン粉末が好ましい。また、酸化チタン結晶格子中に窒素を含有させたTi-O-N構成を有する酸窒化チタンの粉末も好ましく使用でき、この酸窒化チタンの粉末として

はW O O 1 / 1 0 5 5 2 号公報で開示されているような、酸化チタン結晶格子中に窒素を含有させたT i - O - N構成を有し、可視光領域において光触媒作用を発現する光触媒物質が好ましい。

【0 0 1 5】

前記酸窒化チタンの粉末は、例えばW O O 1 / 1 0 5 5 2 号公報に示されているように酸窒化チタンや、含水酸化チタンをアンモニアを含む雰囲気、窒素ガスを含む雰囲気又は窒素ガスと水素ガスの混合雰囲気中で熱処理することで得ることができる。また、この酸窒化チタン粉末は特開2 0 0 2 - 1 5 4 8 2 3 号公報に示されているように、酸化チタンの粉末と尿素を攪拌混合した後に加熱して得ることもでき、またその外部表面側に窒素を含まない酸化チタン粉末を有するものであってもよい。

【0 0 1 6】

また、本発明で用いる光触媒作用のある酸化チタンとしては、特開2 0 0 1 - 2 0 5 1 0 4 号公報に開示されているように酸窒化チタンのチタンをバナジウム、クロム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛、ルテニウム、ロジウム、レニウム、オスミウム、パラジウム、プラチナ、イリジウム、ニオブ、モリブデンの少なくとも一種で、置換するか、酸化チタン結晶の格子間にドーピングするか又は酸化チタンの多結晶集合体の結晶粒界にドーピングしてなる酸窒化チタン粉末を用いることもできる。この酸化チタン粉末は従来の酸化チタン粉末の場合と比較して光吸収スペクトルの吸収端が長波長側にシフトしてより長波長の光で光触媒活性を示すことが可能である。

【0 0 1 7】

このような本発明で用いる前記光触媒作用のある酸化チタン結晶格子中に窒素を含有させたT i - O - N構成を有する酸窒化チタンの粉末や酸窒化チタンのチタンを前記した特定の金属で置換するか、酸化チタン結晶の格子間にドーピングするか又は酸化チタンの多結晶集合体の結晶粒界にドーピングしてなる酸窒化チタン粉末としては、その表面にセラミックを島状、針状又は網目状に担持したものであってもよく、セラミックとしては例えば、アルミナ、シリカ、ジルコニア、マグネシア、カルシア、リン酸カルシウム、アパタイト、アモルファスの酸化

チタン、フッ素樹脂の中から選ばれた少なくとも一つであることができる。これらのセラミックは歯牙に沈着した色素を吸収し易く漂白性能を向上させることができる。

【0018】

また、前記したような光触媒作用のある酸化チタン粉末は、その表面に電荷分離物質が担持されたものであってもよく、電荷分離物質としては例えば、Pt, Pd, Ni, RuO_x , NiO_x , SnO_x , Al_xO_y , ZnO_x のうちから選ばれた少なくとも一つであることができる。これらの電荷分離物質は電子又は正孔を捕獲するため、電子と正孔が再結合するのを効果的に防止して、より効率的な光触媒反応を行なわせることができ、以って漂白性能を向上させることができる。

【0019】

光触媒作用のある酸化チタン粉末の粒子径は1～500nmのものが好適に用いられるが、より好ましくは5～200nmのものである。光触媒作用のある酸化チタン粉末の配合量としては、少量であっても十分その効果が得られるが、余り少ないと歯牙の変色度合いによっては好ましい結果を得るのに長時間を要する場合があります、また多過ぎると酸化チタン自身の遮光性のために却って漂白効果の低下が生じる虞がある。そのため酸化チタン粉末の配合量は、第一成分中に0.001～30重量%が好ましく、より好ましくは0.001～10重量%、更に好ましくは0.01～2重量%である。

【0020】

本発明に係る歯牙用漂白剤セット及び歯牙漂白方法においては、光触媒作用のある酸化チタン粉末を含む第一成分を歯牙に効率良く接触させるために有機溶媒を使用する必要がある。歯牙への付着操作の点からは有機溶媒として例えば、エタノール、グリセリン、エチレングリコール、ジエチレングリコール、プロピレングリコールなどのアルコールや多価アルコールが好ましい。多価アルコールの中では、例えば、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ソルビトール、マンニトールの単独又は混合物が安全性に優れ且つ歯牙に馴染みが良いので好ましい。

【0021】

本発明に係る歯牙用漂白剤セット及び歯牙漂白方法における第一成分及び第二成分は、第一成分の後に歯牙に適用する第二成分に含まれる水中で過酸化水素を発生する化合物の活性を高めるためにpH値を5.0～10.0に調整しておくことが好ましい。これは、pH値が5.0未満であると歯質が脱灰される可能性が高いため好ましくなく、10.0を超えると歯質のタンパク質が変性を起こし易いため好ましくない。

【0022】

本発明に係る歯牙用漂白剤セット及び歯牙漂白方法における第一成分には、後に適用する第二成分に含まれる水中で過酸化水素を発生する化合物の活性を高める目的で金属酸化物、金属塩、金属粉末の少なくとも一種を配合することが好ましい。この金属酸化物、金属塩、金属粉末の少なくとも一種は、第二成分に配合すると水中で過酸化水素を発生する化合物との反応が急激に起こってしまうために第一成分側に配合することが必要である。金属酸化物、金属塩、金属粉末としては水中で過酸化水素を発生する化合物と反応し得る物質であれば特に制限はないが、金属酸化物としてはマンガン酸化物、酸化白金、酸化ルテニウム、酸化チタン、酸化鉄などの粉末が好ましく、金属塩としては塩化アルミニウム、酢酸アルミニウム、サリチル酸アルミニウム、アクリル酸アルミニウム、水酸化アルミニウム、硝酸アルミニウム、炭酸アルミニウム、乳酸アルミニウム、硫酸アルミニウム、イタコン酸アルミニウム、リン酸アルミニウム、ポリ塩化アルミニウム、ヨウ化アルミニウム、塩化鉄、硫酸鉄、硝酸鉄、水酸化鉄、硫酸アンモニウム鉄、クエン酸鉄、コハク酸鉄、臭化鉄、リン酸鉄、鉄ジクロライド、エチレンジアミン鉄、蔞酸鉄、塩化錫、酢酸錫、リン酸錫、二リン酸錫などが挙げられる。場合によってはこれ等の化合物を2種以上使用しても差し支えない。金属粉末としては白金、金、ルテニウム、各種ステンレス鋼、チタンなどの粉末が好ましい。これらの粉末は平均粒子径が1～500nmのものが好適に用いられるが、より好ましくは5～200nmのものである。配合量としては第一成分中に0.001～10重量%が好ましく、より好ましくは0.001～5重量%、更に好ましくは、0.01～1重量%である。これらの配合量は少量であっても十分その効果が得られるが、余り少ないと漂白効果の向上が得られ難い傾向があり、また

多過ぎると歯牙表面への被膜が厚くなり過ぎて歯牙に対する漂白効果が得られ難い傾向がある。

【0023】

本発明に係る歯牙用漂白剤セット及び歯牙漂白方法における第一成分には、光触媒作用のある酸化チタンを歯面により効率良く留めておくため及び歯牙への適用の容易さから、更に増粘剤を0.5～20重量%含むことが好ましい。増粘剤の配合量が0.5重量%未満では増粘剤を配合する効果が得られ難く、20重量%を超えて配合すると溶液の粘度が高過ぎて歯牙への適用時の操作性が悪化する虞がある。増粘剤としては、従来から歯科で用いられている増粘剤が特に制限されることなく使用可能で、例えば繊維素グルコース酸ナトリウム、アルギン酸ナトリウム、アルギン酸プロピレングリコールエステル、カルボキシポリメチレン、カルボキシメチルセルロースナトリウム、カルボキシメチルセルロースカルシウム、メチルビニルエーテル/無水マレイン酸、デンプングリコール酸ナトリウム、デンプンリン酸エステルナトリウム、ポリアクリル酸ナトリウム、メチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルソース、ポリビニルピロリドンなどの合成増粘剤や、グアーガム、カジブピーンガム、タラガム、タマリンドシードガム、アラビアガム、トラガントガム、カラヤガム、アルギン酸、カラギナン、キサンタンガム、ジェランガム、カードラン、キチン、キトサン、キトサミンなどの天然増粘剤、炭酸カルシウム、ケイ酸カルシウム、ケイ酸マグネシウム、ケイ酸マグネシウムナトリウム、シリカ粉末、非晶質含水ケイ酸、ヒュームドシリカなどの無機質増粘剤を例示することができる。増粘剤による適度な粘度は実験の結果0.2～30 Pa・s (25℃) の範囲が好ましいことが確認されている。この粘度を得るための増粘剤の配合量は、前述の範囲内で増粘剤の種類により様々であり、適当な配合量は各増粘剤毎に個別に定められる。

【0024】

本発明に係る歯牙用漂白剤セット及び歯牙漂白方法における第一成分には、光触媒作用のある酸化チタンの反応性の点から、更に水を配合することがある。水は第一成分中に1～30重量%配合されることが好ましい。1重量%未満では酸化チタンの反応が十分でなく、30重量%を超えると第一成分が歯面で乾燥し難

くなる傾向がある。

【 0 0 2 5 】

本発明に係る歯牙用漂白剤セット及び歯牙漂白方法における第二成分に使用する水中で過酸化水素を発生する化合物としては、水溶液としたときに過酸化水素を発生しうるものであれば特に限定されないが、例えば、過酸化水素、過ほう酸塩、過炭酸塩、過リン酸塩、過硫酸塩類、過酸化カルシウム、過酸化マグネシウム、過酸化尿素等を挙げることができ、好ましくは過酸化水素、過酸化尿素である。この水中で過酸化水素を発生する化合物は、第二成分中に 1 ～ 4 0 重量%含まれることが好ましく、より好ましくは 1 ～ 1 5 重量%である。1 重量%未満であると漂白効果が得られ難く、4 0 重量%を超えて配合しても漂白効果に顕著な差が見られ難く、安全性の見地から有利ではない。

【 0 0 2 6 】

本発明に係る歯牙用漂白剤セット及び歯牙漂白方法における第二成分には、水中で過酸化水素を発生する化合物を歯面により効率良く留めておくため及び歯牙への適用の容易さから、増粘剤が配合されていることは必要であり、その配合量は 0 . 5 ～ 2 0 重量%が好ましい。増粘剤の配合量が 0 . 5 重量%未満では増粘剤を配合する効果が得られ難く、2 0 重量%を超えて配合すると溶液の粘度が高過ぎて歯牙への適用時の操作性が悪化する虞がある。尚、増粘剤としては前記した第一成分に配合できる増粘剤が使用でき、増粘剤による適度な粘度は実験の結果 0 . 2 ～ 3 0 P a ・ s (2 5 ° C) の範囲が好ましいことは、前記した第一成分に配合できる増粘剤の場合と同様である。

【 0 0 2 7 】

本発明に係る歯牙用漂白剤セット及び歯牙漂白方法における第二成分には、水中で過酸化水素を発生する化合物を安定して分散させるための基材として担体が配合されていることが必要である。前述の増粘剤に合わせた担体又は担体の組み合わせを使用することによって選択された水中で過酸化水素を発生する化合物の濃度及び第二成分の粘度を調整することができる。担体としては、水、ソルビトール、グリセロール、ステアリルアルコール、グリセリン、エチレングリコール、ジエチレングリコール、ポリエチレングリコール、プロピレングリコール、ポ

リプロピレングリコール，ソルビトール，マンニトールやその他のポリオールなどが使用できる。

【 0 0 2 8 】

本発明に係る歯牙用漂白剤セット及び歯牙漂白方法における第一成分や第二成分には、その効果を低下させない範囲で甘味料，香料，防腐剤，安定剤などの通常の添加剤を含有してもよいのは勿論である。

【 0 0 2 9 】

本発明に係る歯牙漂白方法を実施するには、先ず光触媒作用のある酸化チタン粉末を含む有機溶媒から成る第一成分を歯牙表面に付着させる。最も簡易に歯牙表面に一層付着させる方法としては、第一成分を筆などを用いて歯牙表面に直接塗布する方法である。

その後、水中で過酸化水素を発生する化合物と増粘剤と担体とから成る第二成分を歯牙表面に接触させる。この第二成分においても最も簡単に歯牙表面に接触させる方法は第一成分の場合と同様に筆などを用いて歯牙表面に直接塗布する方法であるが、その他にも、第二成分を十分な光透過性を持つ布，紙，ガラスクロス，セラミックスペーパー，有機ゲル，無機ゲルなどに含浸させ、それを歯面に接触させる方法を例示することもできる。その他に、第二成分を適当な例えば光透過性のある樹脂製のマウスガード状の保持体に保持させてこれを歯又は歯列に装着して第二成分を第一成分が付着した歯牙表面に接触させる方法など適宜の方法・手段を利用することもできる。しかる後に、光照射を行うのである。

【 0 0 3 0 】

本発明に係る歯牙漂白方法を実施するのに用いられる光の光源（照射器具）としては、一般に白熱灯，蛍光灯，ハロゲンランプ，キセノンランプ，水銀灯，U V ランプなどが例示されるが、安全性，簡便性，漂白効果の点から、特に L E D（発光ダイオード）、半導体レーザーなどが好ましい。照射する光は、光触媒作用のある酸化チタン粉末の光触媒作用による活性酸素の発生及びその酸化作用の点からは紫外線などエネルギーの大きな短波長の光を多く含む光が望ましいが、紫外線は人体に炎症や癌を引き起こすので有害であるため、安全性の面から可視光を用いることが好ましく、中でもエネルギーの大きな紫及び／又は青の光が最

も好ましい。

【0031】

本発明に係る歯牙漂白方法は、第一成分を歯牙表面に付着させ、第二成分をその上に接触させた後に光を照射するという一連の処置により行われる。この処置は数回繰り返すことにより実施してもよい。これらの付着・接触及び光照射の回数は、歯牙の変色度の程度に応じて適宜調整すればよい。操作は、通常約5～20分おきに新たな歯牙用漂白剤セットを歯牙に適用すればよく、その間隔及び頻度は歯牙の状態や水中で過酸化水素を発生する化合物の種類や濃度に応じて適宜設定すればよい。本発明に係る歯牙用漂白剤セット及び歯牙用漂白方法は無髄歯、有髄歯の双方の漂白に有効であり、それらの歯牙を安全且つ簡便に漂白する上で顕著な効果を発揮する。

【0032】

【実施例】

次に、実施例に基づいて本発明を具体的に説明するが、本発明は当該実施例によって何ら限定されるものではない。

【0033】

<第一成分の作製>

表1～2に示すように有機溶媒としてエタノール、グリセリン、ポリエチレングリコール（重量平均分子量200）の一種又は複数を攪拌しながら光触媒作用のある酸化チタン粉末及び必要により金属粉としてプラチナ粉末又は塩化鉄を投入・分散後、必要により増粘剤としてケイ酸マグネシウムナトリウム、シリカ微粉末（商品名：アエロジルR972，日本アエロジル社製）を少量ずつ加えて歯牙用漂白剤セットの第一成分を作製し、遮光容器内に封入した。

【0034】

光触媒作用のある酸化チタン粉末としては、

<粉末A>

市販の二酸化チタン粉末（商品名：ST-01，石原産業社製）を450℃で30分間熱処理して作製したもの。

<粉末B>

特開 2 0 0 2 - 1 5 4 8 2 3 号公報に示されているように市販の二酸化チタン粉末（商品名：ST-01，石原産業社製）と尿素とを攪拌混合した後、450℃，30分熱処理して作製したもの。

<粉末C>

WO 0 1 / 1 0 5 5 2 号公報に示されているように市販の二酸化チタン粉末（商品名：ST-01，石原産業社製）をアルゴンとアンモニアとの混合ガス雰囲気中で600℃，3時間熱処理して作製したもの。

<粉末B-Ap>

前記粉末Bの表面に、WO 0 1 / 1 0 5 5 2 号公報に示されている方法によりアパタイトを担持させたもの。

<粉末B-Pt>

前記粉末Cの表面に特開 2 0 0 1 - 2 0 5 1 0 3 号公報に示されている方法によりプラチナを担持したもの。

を使用した。

【0035】

<第二成分の作製>

表3に示すようにポリプロピレングリコール，ポリエチレングリコール，グリセリンの一種又は複数と水とを担体とし、そこへ水中で過酸化水素を発生する化合物として過酸化水素及び／又は過酸化尿素を混合し、増粘剤としてケイ酸マグネシウムナトリウム，シリカ微粉末（商品名：アエロジルR972，日本アエロジル社製）の一方又は両者とカルボキシポリメチレン（商品名：カーボボール940，BFグッドリッチ社製）とを少量ずつ加え歯牙用漂白剤セットの第二成分を作製した。

【0036】

前述の各第一成分1～10と各第二成分1～4とを以下のようにそれぞれ組み合わせたものを実施例とした。

即ち、第二成分1と第一成分1～5のそれぞれとの組合わせを実施例1～5、第二成分2と第一成分6～10のそれぞれとの組合わせを実施例6～10、第二成分3と第一成分1～10のそれぞれとの組合わせを実施例11～20、第二成

分 4 と第一成分 1 ～ 1 0 のそれぞれとの組み合わせを実施例 2 1 ～ 3 0 とした。
 なお、第二成分 4 は使用直前に二つの液をその容積が 1 : 1 の割合で混合したものである。また、従来の歯牙用漂白剤組成物として水に二酸化チタン粉末（商品名：ST-01，石原産業社製）3 重量%と過酸化水素 1 0 重量%とを混合したものを比較例 1 とし、過酸化水素 9.94 g，リン酸 0.60 g，ピロリン酸ナトリウム・10 水塩 2.00 g に水を加えて全量を 60 g としたものを比較例 2 とした。

【0037】

【表 1】

	(重量%)				
	一成分 1	一成分 2	一成分 3	一成分 4	一成分 5
粉末 A	5			7	
粉末 B		2			1
粉末 C			2.5		
水	30	25	25		25
エタノール	61	10			
グリセリン		59.95	69.5	38	
ポリエチレングリコール				53	71.95
プラチナ粉末		0.05			0.05
塩化鉄	1		1		
ケイ酸マグネシウムナトリウム	3	3			
シリカ微粉末			2	2	3
計	100	100	100	100	100

【0038】

【表 2】

	(重量%)				
	一成分 6	一成分 7	一成分 8	一成分 9	一成分 10
粉末 B-Ap	1.5	2	4		
粉末 B-Pt		3		5	5
水				10	5
エタノール	95	85	83.5	70	80
グリセリン		8			
ポリエチレングリコール			10	14	
プラチナ粉末	0.5		0.5		
塩化鉄					2
ケイ酸マグネシウムナトリウム	3	2	2	1	4
シリカ微粉末					4
計	100	100	100	100	100

【 0 0 3 9 】

【表 3】

	(重量%)				
	二成分 1	二成分 2	二成分 3	二成分 4	
ポリプロピレングリコール		40			
ポリエチレングリコール			10		
グリセリン	16.5	14	20	76.5	
水	60	10	31.5		61.5
過酸化水素	20	10			35
過酸化尿素		20	30	20	
ケイ酸マグネシウムナトリウム			3		
シリカ微粉末		2.5	2		
カルボキシポリメチレン	3	3	3	3	3
水酸化ナトリウム (pH調整剤)	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
計	100	100	100	100	100

【 0 0 4 0 】

＜使用方法＞

前記各実施例及び各比較例を使用するに当り、以下の工程により行った。

- 1) 前準備として対象となる歯牙表面の歯垢、歯石、タールなどを超音波スクレーパーで除去した。
- 2) 歯牙表面を通法によりラバーカップなどで清掃の後、乾燥した。
- 3) ラバーダムを用いて防湿した。
- 4) 歯牙表面に各実施例においては第一成分を筆を用いて塗布し、20秒間放置した後にエアーで乾燥した。
- 5) 歯牙表面に、各実施例においては第二成分を、比較例においては歯牙用漂白剤組成物を塗布又は粘性の高いものは歯面に盛って歯科用可視光照射器（商品名：ラボライトLVII，ジーシー社製）を用いて光照射を行った。なお、1回の照射時間を5分とし、歯面から照射器の距離は約1cmとした。
- 6) 10～30分おきに新たな歯牙用漂白剤の塗布及び光照射を繰り返した。
- 7) 漂白の効果の測定として、漂白前後の歯牙の色を歯科用シェードガイド（商品名：Lumin-vacuum，ビタ社製）を判定基準として目視にて判定を行うと共に、漂白前後の歯牙の色をビデオカメラで撮影しておき漂白後にその映像を患者に見せて、

+++ : 患者が著しく満足した

++ : 患者が或る程度満足する漂白効果があった

+ : 漂白効果が認められるがやや変色が残る患者が満足しなかった

にてその効果を評価した。結果を表 4 に纏めて示す。

【 0 0 4 1 】

【表 4】

	部位	累計光照射時間 (分)	歯牙のシェード色		効果
			処置前	処置後	
実施例 1	上顎左 1	90	B4	B2	+++
実施例 2	上顎左 2	100	A4	A2	+++
実施例 3	上顎右 1	80	A3.5	A2	+++
実施例 4	上顎左 3	90	A3.5	A2	+++
実施例 5	上顎右 2	100	D4	D2	++
実施例 6	下顎左 1	70	B3	B1	+++
実施例 7	下顎左 2	65	B 3	B1	+++
実施例 8	上顎右 3	80	A4	A2	+++
実施例 9	上顎右 3	90	B4	B2	+++
実施例 10	上顎左 2	80	C4	C2	+++
実施例 11	上顎右 2	120	A3.5	A2	+++
実施例 12	下顎左 3	100	B4	B2	+++
実施例 13	下顎左 2	90	C4	C2	+++
実施例 14	下顎右 1	90	C4	C2	+++
実施例 15	下顎右 2	80	A3.5	A2	+++
実施例 16	下顎左 2	100	A4	A3	+++
実施例 17	下顎左 1	90	A3.5	A2	+++
実施例 18	上顎左 1	120	A3.5	A2	+++
実施例 19	上顎右 2	100	C4	C2	+++
実施例 20	下顎左 1	90	B4	B2	++
実施例 21	下顎左 2	60	B3	B1	++
実施例 22	上顎右 3	60	A3.5	A2	+++
実施例 23	上顎右 3	50	A3.5	A2	+++
実施例 24	上顎左 2	30	D4	D2	+++
実施例 25	上顎左 2	55	A4	A2	+++
実施例 26	下顎右 2	65	B3	B1	+++
実施例 27	下顎左 2	70	B4	B2	+++
実施例 28	下顎左 1	60	C4	C2	+++
実施例 29	上顎左 1	50	A3.5	A2	+++
実施例 30	下顎左 3	85	B3	B1	+++
比較例 1	上顎右 3	100	A3.5	A3	+
比較例 2	下顎右 2	65	B3	B2	+

【0042】

前記の結果から明らかなように、本発明に係る歯牙用漂白剤セットを使用した本発明に係る及び歯牙漂白方法は、高い漂白効果を持つことが確認された。

【0043】

【発明の効果】

以上に詳述したように、本発明に係る歯牙用漂白剤セット及び歯牙漂白方法は、従来では漂白剤中に 5 % 前後配合されていた光触媒作用のある酸化チタン粉末が外部からの光によって励起される際に自らの持つ遮光性により漂白効果を発揮するべき歯牙の表面にある酸化チタンまで光が届きにくいという欠点を解消したのもであり、効率良く酸化チタンを励起させて歯牙の漂白を行うことができるものであるので、歯牙の漂白分野に貢献する価値の非常に大なるものである。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 従来の歯牙用漂白剤における 5 重量%前後配合されている光触媒作用のある酸化チタン粉末が外部からの光により励起される際に酸化チタン自らの持つ遮光性により漂白効果を発揮するべき歯牙の表面にある酸化チタンまで光が届きにくいという欠点を解消した歯牙用漂白剤セット及び歯牙用漂白方法を提供する。

【解決手段】 光触媒作用のある酸化チタン粉末を含む有機溶媒とから成り好ましくは更に金属酸化物、金属塩、金属粉末の少なくとも一種や増粘剤や水が含まれているから成る第一成分と、水中で過酸化水素を発生する化合物と増粘剤と担体とから成る第二成分とから構成されている歯牙用漂白剤セットを使用して、第一成分を歯牙表面に付着させ、次いで第二成分を歯牙表面に接触させ光照射を行って歯牙を漂白する。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000181217]

1. 変更年月日	1991年 6月12日
[変更理由]	名称変更
住 所	東京都板橋区蓮沼町76番1号
氏 名	株式会社ジーシー

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003609]

1. 変更年月日 1990年 9月 6日

[変更理由] 新規登録

住 所 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番地の1
氏 名 株式会社豊田中央研究所